Searching PAJ Page 1 of 2

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2001-055493

(43) Date of publication of application: 27.02.2001

(51)Int.Cl.

C08L 67/00 C08K 3/00 C08K 3/04 C08K 5/29 H01B 1/24 H01M 8/02 H01M 8/10

(21)Application number: 2000-171423 (71)Applicant: NISSHINBO IND INC

(22)Date of filing: 08.06.2000 (72)Inventor: SAITO KAZUO

HAGIWARA ATSUSHI

TANNO FUMIO
IMASHIRO YASUO
HORIE TADASHI
UEHARA TSUTOMU

(30)Priority

Priority number: 11162213 Priority date: 09.06.1999 Priority country: JP

(54) ELECTROCONDUCTIVE RESIN COMPOSITION, FUEL CELL SEPARATOR COMPRISING THE SAME, THE PRODUCTION THEREOF AND SOLID POLYMER TYPE FUEL CELL USING SAID FUEL CELL SEPARATOR

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an electroconductive resin composition that can be produced in large amounts and shows excellent high-temperature durability, high resistance to hydrolysis.

SOLUTION: This electroconductive resin composition is constituted with (A) 100 pts.wt. of a liquid crystal polyester resin forming an anisotropic molten phase, (B) 0.01-30 pts.wt. of a carbodiimide, (C) 50-3,000 pts.wt. of electroconductive carbonaceous powder, (D) 0-10,000 pts.wt. of a filler. This invention simultaneously provides a fuel cell separator made of the electroconductive resin composition, the production process therefor and a solid polymer type

Searching PAJ Page 2 of 2

fuel cell using this fuel cell separator.

## **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination] 14.09.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3321708

[Date of registration] 28.06.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

# (19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号 特開2001-55493 (P2001 - 55493A)

(43)公開日 平成13年2月27日(2001.2.27)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	-	識別記号		FI					7	·-マコード(老	(法
CO8L	67/00	MACCATIC . 3			8 L	67/00			•		•
C08E	3/00				8 K	3/00					
COOK					011	3/04					
	3/04					-					
	5/29					5/29			-		
H01B	1/24			H 0		1/24			Z		
			審査請求	有	爾习	マスタッグ マスタッグ マスティス マスティス マスティス かんしょう マスティス アイス アイス アイス アイス アイス アイス アイス アイス アイス アイ	OL	全	7 良) 	最終5	[に続く
(21)出願番号		特顧2000-171423(P2000-1	171423)	(71)	出願	人 000004	1374				
						日清紙	<b>趙株式</b>	会社			
(22)出顧日		平成12年6月8日(2000.6.8	)			東京都	中央区	日本権	人形町	2丁目31	番11号
(				(72)	発明	者 斎藤	一夫				
(31)優先権=	<b>上張番号</b>	<b>特顧平11-162213</b>				千葉県	<b>千葉市</b>	緑区大	野台1	-2-3	日清
(32)優先日		平成11年6月9日(1999.6.9	)							ター内	
(33)優先権	中幕国	日本(JP)		(72)	発明						
(00) 废儿油工业四		H-T (72)		ζ,	,,,,			経区人	野台1	-2 - 3	日清
						, . , . ,				ター内	,•
				(74)	代理				.,	- 13	
				(1-1/	'I WE		· 少林	- T# 1	( <i>t</i> st	1名)	
						лед	_ / যুণ্	o a⊯./		1 11)	
										具数官	ぼに続く
			1							政府等	ストニアでへ

(54) 【発明の名称】 導電性樹脂組成物及び該導電性樹脂組成物よりなる燃料電池セパレータ、その製造方法及び当該 燃料電池セパレータを使用した固体高分子型燃料電池

## (57)【要約】

【課題】 従来技術の問題点を解決し、大量生産が可能 であると共に、高温耐久性、加水分解耐久性に優れた導 電性樹脂組成物を主として提供する。

【解決手段】 本発明が採用した導電性樹脂組成物の構 成は、(A)異方性溶融相を形成する液晶ポリエステル 樹脂 100重量部、(B)カルボジイミド化合物 0.01~30重量部、(C)導電性炭素質粉末 50 ~3000重量部、(D)充填材 0~10000重量 部よりなることを特徴とする。本発明は同時に、上記導 電性樹脂組成物よりなる燃料電池セパレータ、その製造 方法及び前記燃料電池セパレータを用いた固体高分子型 燃料電池を提供する。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】(A)異方性溶融相を形成する液晶ポリエステル樹脂 100重量部、(B)カルボジイミド化合物 0.01~30重量部、(C)導電性炭素質粉末50~3000重量部、(D)充填材 0~10000重量部よりなることを特徴とする導電性樹脂組成物。

【請求項2】 請求項1に記載の導電性樹脂組成物よりなる燃料電池セパレータ。

【請求項3】 請求項1に記載の導電性樹脂組成物をセパレータ形状に成形する燃料電池セパレータの製造方法。

【請求項4】 請求項2に記載の燃料電池セパレータを使用した固体高分子型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は導電性樹脂組成物及び該導電性樹脂組成物よりなる燃料電池セパレータ、そ

燃料電極反応: H<sub>2</sub>→2H<sup>+</sup>+2e<sup>-</sup> 酸化剤電極反応: 2H<sup>+</sup>+2e<sup>-</sup>+1/2O<sub>2</sub>→H<sub>2</sub>O

【0005】即ち、燃料電極上で水素( $H_2$ )はプロトン( $H^*$ )となり、プロトンが固体高分子電解質膜中を酸化剤電極上まで移動し、酸化剤電極上で酸素( $O_2$ )と反応して水( $H_2O$ )を生ずるのであり、従って、固体高分子型燃料電池の運転には、反応ガスの供給と排出、電流の取り出しが必要となり、更に、固体高分子型燃料電池では、通常、室温から $120^{\circ}$ 以下の範囲での湿潤雰囲気下の運転が想定され、そのため水を液体状態で扱うことになるので、燃料電極への水の補給管理と酸化剤電極からの水の排出が必要となる。

【0006】一方、燃料電池を構成する部品の内、セパレータは、燃料電池内を流れる燃料ガス、酸化剤ガス及び冷却水が混合しないように分離させる働きをするものであり、ガスバリア性、導電性や耐食性等が要求される部材である。

【0007】上記固体高分子型燃料電池のセパレータとしては、生産性やコストの面で有利なものが提案されており、これらは各種の熱可塑性樹脂或いは熱硬化性樹脂をバインダーとした炭素複合材料であり、例えば、特開昭55-019938号公報では熱硬化性樹脂が、又、特開昭57-61752号公報や特開昭57-617521号公報ではポリプロピレン、ナイロンのような熱可塑性樹脂がバインダーとして使用されたセパレータが説明されている。

【0008】しかしながら、これらの熱可塑性樹脂或いは熱硬化性樹脂をバインダーとした炭素複合材料によるセパレータは、以前から使用されていたグラファイト板を機械加工して製造するセパレータよりも、生産性やコストの面では優れているものの、高温耐久性、加水分解耐久性に問題があった。

[0009]

の製造方法及び当該燃料電池セパレータを使用した固体 高分子型燃料電池に関するものである。

[0002]

【従来の技術】燃料電池は、電解質を介して一対の電極を接触させ、この電極のうちの一方に燃料を、他方に酸化剤を供給し、燃料の酸化を電池内で電気化学的に行うことにより、化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換する装置であり、この燃料電池には電解質によりいくつかの型があるが、近年、高出力が得られる燃料電池として、電解質に固体高分子電解質膜を用いた固体高分子型燃料電池が注目されている。

【0003】この固体高分子型燃料電池は、燃料電極に 流体である水素ガスを、酸化剤電極に流体である酸素ガ スを供給することにより、外部回路より電流を取り出す ものであるが、この際、各電極においては下記(1)、 (2)のような反応が生じている。

[0004]

(1)

(2)

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記のような従来技術の問題点を解決し、大量生産が可能であることはもちろん、高温耐久性、加水分解耐久性に優れた導電性樹脂組成物を提供することを主たる目的としてなされた。

[0010]

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために本発明が採用した導電性樹脂組成物の構成は、(A) 異方性溶融相を形成する液晶ポリエステル樹脂 100 重量部、(B)カルボジイミド化合物 0.01~30 重量部、(C)導電性炭素質粉末 50~3000重量 部、(D)充填材 0~10000重量部よりなることを特徴とするものである。

【0011】又、同時に本発明は、上記導電性樹脂組成物よりなる燃料電池セパレータ、その製造方法及び前記燃料電池セパレータを用いた固体高分子型燃料電池を提供する。

【0012】即ち、本発明の発明者は、固有抵抗が低く、機械的強度に優れた導電性樹脂組成物につき検討した結果、導電性炭素質粉末に対し、液晶ポリエステル樹脂(LCP)とカルボジイミド化合物よりなる樹脂組成物をバインダーとして使用することにより、従来技術において問題となっていたLCPの耐水性が改良されただけでなく、導電性複合材として、低い固有抵抗を有し、更には機械的強度やガスバリア性が向上することを見出し、本発明を完成するに至った。)

[0013]

【発明の実施の形態】以下に本発明の詳細な説明を示 す

【0014】本発明で(A)成分として使用する液晶ポリエステルは、サーモトロピック液晶ポリマーと呼ばれ

るポリエステルで、異方性溶融相を形成できるものである。本発明では中でも、固体高分子型燃料電池の運転条件で組成物として変形しない、熱変形温度が80℃以上、好ましくは80℃~400℃、更に好ましくは120℃~350℃のものを使用する。

【0015】本発明で使用する液晶ポリエステルは、具体的には(i)芳香族ジカルボン酸と芳香族ヒドロキシカルボン酸との組み合わせからなるもの、(ii)異種の芳香族ヒドロキシカルボン酸からなるもの、(iii)芳香族ジカルボン酸と芳香族ジオールとの組合せからなるもの、(iv)ポリエチレンテレフタレート等のポリエス

テルに芳香族ヒドロキシカルボン酸を反応させたもの、 等が挙げられる。尚、これらの芳香族ジカルボン酸、芳 香族ジオール及び芳香族ヒドロキシカルボン酸の代わり に、それらのエステル形成性誘導体が使用されることも ある。

【0016】上記液晶ポリエステルの繰り返し構造単位 としては、下記のものを例示することができるが、これ らに限定されるものではない。

【0017】芳香族ヒドロキシカルボン酸に由来する繰り返し構造単位:

【化1】

尚、式中のXはハロゲン、アリル基又はアルキル基を表している(以下の構造式において同様である。)。

造単位: 【化2】

【0018】芳香族ジカルボン酸に由来する繰り返し構

【0019】芳香族ジオールに由来する繰り返し構造単

【化3】

位:

[0020]

$$\begin{cases}
(\text{lt 4}) \\
- \text{cH}_{\text{s}} \text{ch}_{\text{s}}
\end{cases}$$

$$\begin{cases}
\text{cH}_{\text{s}} \text{ch}_{\text{s}} \text{ch}_{\text{s}}
\end{cases}$$

$$\begin{cases}
\text{cH}_{\text{s}} \text{ch}_{\text{s}} \text{ch}_{\text{s}}
\end{cases}$$

$$\begin{cases}
\text{ch}_{\text{s}} \text{ch}_{\text{s}}
\end{cases}$$

【0021】尚、上記液晶ポリエステルは、耐熱性、機械的特性、加工性のバランスからは、芳香族ヒドロキシカルボン酸に由来する繰り返し構造単位を少なくとも30モル%含むものが好ましい。

【0022】本発明で(B)成分として使用するカルボジイミド化合物としては、分子中に1個以上のカルボジイミド基(-N=C=N-)をもつ化合物であり、下式で表されるモノカルボジイミド化合物

R-N=C=N-R

或いはポリカルボジイミド化合物

(-R-N=C=N-) n

(ここでRは炭素原子を1個以上有するものであり、nは2以上の整数である。)である。

【0023】上記モノカルボジイミド化合物としては、一般的に良く知られた方法で合成されたものを使用することができ、例えば、カルボジイミド化触媒に3ーメチルー1ーフェニルー2ーホスホレンー1ーオキシドを用い、各種イソシアネートを約70度以上の温度で、無溶媒又は不活性溶媒中で脱炭酸縮合反応により合成することができる。

【0024】モノカルボジイミド化合物の具体例としては、ジシクロヘキシルカルボジイミド、ジイソプロピルカルボジイミド、ジメチルカルボジイミド、ジイソブチルカルボジイミド、ジメチルカルボジイミド、ジートーブチルイソプロピルカルボジイミド、ジフェニルカルボジイミド、ジーセーブチルカルボジイミド、ジー $\beta$ -ナフチルカルボジイミド等を挙げることができ、これらの中では特にジシクロカルボジイミド、ジイソプロピルカルボジイミドが、工業的に入手が容易である点から好適である。

【0025】又、ポリカルボジイミド化合物も種々の方法で製造することができ、基本的には従来のポリカルボ

ジイミドの製造方法(米国特許第2941956号明細書や特公昭47-33279号公報、J. Org. Chem, 28, 2069-2075(1963)、Chemical Review 1981, Vol. 81

No. 4 p619-621)によることができる。 具体的には有機ジイソシアネートの脱二酸化炭素を伴う 縮合反応によりイソシアネート末端ポリカルボジイミド を合成することにより製造することができるものである。

【0026】上記方法において、ポリカルボジイミド化 合物の合成原料である有機ジイソシアネートとしては、 例えば芳香族ジイソシアネート、脂肪族ジイソシアネー ト、脂環族ジイソシアネートやこれらの混合物が使用で き、具体的には、1,5-ナフタレンジイソシアネー ト、4,4'ージフェニルメタンジイソシアネート、 4,4'-ジフェニルジメチルメタンジイソシアネー ト、1,3-フェニレンジイソシアネート、1,4-フ ェニレンジイソシアネート、2,4-トリレンジイソシ アネート、2,6-トリレンジイソシアネート、2,4 ートリレンジイソシアネートと2,6ートリレンジイソ シアネートの混合物、ヘキサメチレンジイソシアネー ト、シクロヘキサン-1,4-ジイソシアネート、キシ リレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネー ト、ジシクロヘキシルメタン-4、4'-ジイソシアネ ート、メチルシクロヘキサンジイソシアネート、テトラ メチルキシリレンジイソシアネート、2、6 – ジイソプ ロピルフェニルイソシアネート、1,3,5-トリイソ プロピルベンゼン-2、4-ジイソシアネート等を例示 することができる。

【0027】又、上記有機ジイソシアネートからのポリカルボジイミド化合物の製造においては、モノイソシアネート等の、ポリカルボジイミド化合物の末端イソシア

ネートと反応する化合物を用いて、適当な重合度に制御して使用することができる。

【0028】このようにポリカルボジイミドの末端を封止してその重合度に制御するためのモノイソシアネートとしては、例えば、フェニルイソシアネート、トリルイソシアネート、ジメチルフェニルイソシアネート、シクロヘキシルイソシアネート、ブチルイソシアネート、ナフチルイソシアネート等を例示することができる。

【〇〇29】又、上記の他にも、封止剤としての末端イソシアネートと反応し得る活性水素化合物には、脂肪族、芳香族、脂環族化合物の中で、一〇日基を持つメタノール、エタノール、フェノール、シクロヘキサノール、Nーメチルエーテル、ポリプロピレングリコールモノメチルエーテル;=NH基を持つジエチルアミン、ジシクロヘキシルアミン;-NH2基を持つブチルアミン、シクロヘキシルアミン;-COOH基を持つコハク酸、安息香酸、シクロヘキサン酸;-SH基を持つエチルメルカプタン、アリルメルカプタン、チオフェノールやエポキシ基等を有する化合物を使用することができる。

【0030】上記有機ジイソシアネートの脱炭酸縮合反応は、カルボジイミド化触媒の存在下に進行するのであり、この触媒としては、例えば、1ーフェニルー2ーホスホレンー1ーオキシド、3ーメチルー1ーフェニルー2ーホスホレンー1ーオキシド、3ーメチルー2ーホスホレンー1ーオキシド及びこれらの3ーホスホレン異性体等のホスホレンオキシド等を使用することができ、これらの内、反応性の面から3ーメチルー1ーフェニルー2ーホスホレンー1ーオキシドが好適である。

【0031】又、本発明で(C)成分として用る導電性 炭素質粉末としては、鱗片状黒鉛、土魂状黒鉛、アセチレンブラック、カーボンブラック、ケッチェンブラック、膨張黒鉛、人造黒鉛の粉末を挙げることができ、その平均粒径としては、10nm~100μm、好ましくは5μm~80μmという範囲を挙げることができる。【0032】更に、本発明で(D)成分として用いる充填材としては、繊維状のものとして有機又は無機繊維を用いることができ、具体的には、ガラス繊維、シラスガラス繊維、アルミナ繊維、炭化珪素繊維、セラミック繊維、アスベスト繊維、石コウ繊維、金属繊維等を例示することができる。

【0033】又、充填材としては、粒状の有機又は無機フィラーを用いることもでき、具体的には、ワラステナイト、セリサイト、カオリン、マイカ、クレー、ベントナイト、アスベスト、タルク、アルミナシリケート等の珪酸塩;アルミナ、酸化珪素、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム、酸化チタン等の金属酸化物;炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ドロマイト等の炭酸塩;硫酸

カルシウム、硫酸バリウム等の硫酸塩;ガラスビーズ、 窒化ホウ素、炭化珪素、サロヤン、シリカ等を例示する ことができ、これらは中空或いは多孔質であってもよ い。

【0034】尚、これらの補強材は、バインダーである 上記しCPとの密着性を上げるため、予めシランカップ リング材、カルボジイミド、各種エマルジョン等の一般 的に表面処理剤として使用される処理剤で処理されてい てもよい。

【0035】而して本発明の導電性樹脂組成物は、上記説明した(A)乃至(D)の各成分よりなるものであるが、それらに量比に関しては以下の通りである。

(A) 異方性溶融相を形成する液晶ポリエステル樹脂 100重量部、(B) カルボジイミド化合物 0.01 ~30重量部、好ましくは0.5~5重量部(C) 導電 性炭素質粉末 50~3000重量部、好ましくは10 0~2000重量部、(D) 充填材 0~10000重 量部

【0036】尚、(B)成分が0.01重量部以上、特に0.5重量部以上であれば、加水分解耐久性やガスバリア性が向上し、30重量部以下、特に5重量部以下であれば、セパレータに必要な低い電気抵抗を保つことができる。

【0037】又、(C)成分が50重量部以上であれば、電気抵抗を低くすることができ、3000重量部以下であれば、セパレータに必要な機械的強度を保つことができる。更に、100~2000重量部の範囲であれば、これらの効果を一層高めることができる。

【0038】(D)成分についても、10000重量部以下であれば、セパレータに必要な機械的強度を保つことができる。

【0039】一方、本発明の燃料電池セパレータは、本発明の製造方法に従い、上記(A)~(D)成分を混合した導電性樹脂組成物を、セパレータ形状に成形することによって製造することができる。

【0040】即ち、まず上記(A)~(D)成分を上記量比の範囲内となるように混合し、導電性樹脂組成物を製造するのであるが、その製造方法としては、(A)~(D)成分を溶融混練することが好ましい。例えば、バンバリミキサー、ゴムロール機、ニーダー、単軸若しくは二軸押出機等を用いて、200℃~400℃の温度で溶融混練すれば、導電性樹脂組成物とすることができる。

【0041】この溶融混練法を実行する前に、液晶ポリエステル樹脂と導電性炭素質粉末の分散性をより一層向上させるために、撹拌棒、ボールミル、サンプルミキサー、スタティツクミキサー、リボンブレンダー等の従来公知の混合方法による混合工程を入れてもよい。

【 0 0 4 2 】 こうして得られた導電性樹脂組成物は、溶融状態のままセパレータ形状に成形する工程に適用して

もよいが、必要に応じて、一旦ペレットとしてもよく、 更にはこのペレットを流動層乾燥、温風循環乾燥、真空 乾燥、真空流動層乾燥等のような従来公知の方法によっ て乾燥させてもよい。

【0043】最後に、この導電性樹脂組成物を、任意の 固体高分子型燃料電池周セパレータ形状に成形するので あり、この成形は、射出成形、圧縮成形、射出一圧縮成 形、トランスファー成形、押出成形、静水圧成形、ベル トプレス、プレス成形、ロール成形等の従来公知の成形 方法より選ばれた1種類の成形方法、又は、2種類以上 の成形方法を組み合わせることによって実行することが でき、中でも、射出成形が大量生産に有利である。

【0044】尚、セパレータの形状としては、燃料極と酸化剤極とを遮蔽する役割を持つと共に、燃料及び酸化剤ガスを燃料電池内に効率よく拡散できるよう、全長を長くして複雑なパターンに折り曲げたガス流路と、マニホールドと呼ばれる貫通孔を、それぞれ少なくとも1つ有する平板状のものが一般的である。又、セパレータには、ガス流路とマニホールドのいずれか一方を具えないものも存在する。

【0045】こうして得られた固体高分子型燃料電池セパレータを用いて、本発明の燃料電池を組み立て、発電運転をするのであるが、その組立方法及び運転方法としては、例えば以下のようなものを挙げることができる。【0046】即ち、固体高分子電解質膜よりなる電解質層の二つの面にそれぞれ燃料電極と酸化剤電極とを密着して配してなる燃料電池セルと、燃料電池セルの燃料電極側の側面に配された複数の燃料ガス用流路及びマニホールドを有する本発明のセパレータと、燃料電池セルの酸化剤電極側の側面に配された複数の酸化剤ガス用流路及びマニホールドを有する本発明のセパレータとを、それぞれ、燃料電極側と酸化剤電極側に密着させてなる単電池を組み立てる。そして、この単電池を複数個直列に積層し、その両端に電気絶縁用の絶縁板を介在させて締

付板を配設して加圧保持し、燃料電極に燃料ガスを、 又、酸化剤電極に酸化剤ガスを供給して直流電流を得る ようにして発電運転が行われるのである。

#### [0047]

【実施例】以下、本発明の実施例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0048】実施例1乃至3及び比較例1.2 4,4'-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート5 90gとシクロヘキシルイソシアネート62.6g及び カルボジイミド化触媒(3-メチル-1-フェニル-2 -ホスホレン-1-オキシド)6.12gを180℃で 48時間反応させ、(4,4'-ジシクロヘキシルメタ ン)ポリカルボジミド(平均重合度=100以下)を得た。

【0049】以下の表1に示す組成で、LCP {全芳香族系熱可塑性ポリエステル、熱変形温度(18.6kg/mm²)240℃(以下、実施例において同様である。)}、(4,4'ージシクロヘキシルメタン)ポリカルボジイミド(表1中ではPCDと略されている)、導電性炭素質粉末(表1中ではCと略されている)及び充填材(表1中ではFRと略されている)を、二軸押出機により溶融混練し、マスターバッチを作成した。このマスターバッチから、射出成型機を使用して、JISK713に規定される多目的ダンベル(幅10mm、厚さ4mm、長さ100mm)を作成し試験片とした。尚、表1中の部数は重量部を示している。

【0050】各試験片につき、以下の方法で物性を測定した。(曲げ試験)インストロン製万能試験機5544型を使用し、支持間距離50mm、試験速度0.5mm/分で曲げ強度を測定した。

(固有抵抗) ナカムラセイミツ製 $\Sigma - 10$ 型を使用し、 4端子法で測定した。

[0051]

#### 【表1】

	LCP重量部	PCD重量移	C重量部	FR重量部	固有抵抗 (mQ·cm)	曲げ強度 (kgf/cm²)
実施例1	100	2	100		13.7	4.68
実施例2	100	2	900		4.3	4.52
実施例3	100	2	900	100	4.0	6.95
比較例1	100		400		18.9	4.23
比較例 2	100		900		5.5	4.35

#### 【0052】実施例4

実施例1で作成した試験片を用い、120℃の熱水中で200時間処理した後の曲げ試験と固有抵抗の測定を行なった。結果を以下の表2に示す。

## 【0053】比較例3

比較例1で作成した試験片を使用し、実施例4と同様の 操作を行なった。結果を以下の表2に示す。

[0054]

【表2】

## 曲げ強度(kgf/cm<sup>5</sup>) 超有紙抗(mΩ・cm) 実施例 4 4.68 13.7 比較例 3 2.50 40.5

# 【0055】実施例5~7

LCP、(4,4'-ジシクロヘキシルメタン)ポリカルボジイミド、導電性炭素質粉末及び充填材を、実施例1~3の組成で二軸押出機により溶融混練し、マスターバッチを作成した。このマスターバッチから、射出成型機を使用して、大きさ100mm角×厚さ2mmの燃料電池セパレータを成形し、この燃料電池セパレータの成

### (7)開2001-55493(P2001-5@寸繳

形性、密度を測定した。

【0056】又、これら燃料電池用セパレータを使用して固体高分子型燃料電池を組み立て、200時間発電試験を行い、電圧を測定して初期電圧に対する電圧降下率を算出した。セパレータの諸物性と燃料電池の性能は、以下の表3に示す通り優れたものであつた。

【0057】比較例4~5

LCP及び導電性炭素質粉末を、比較例1、2の組成で 二軸押出機により溶融混練し、マスターバッチを作成した。このマスターバッチから、射出成型機を使用して、 大きさ100mm角×厚さ2mmの燃料電池セパレータを成形し、この燃料電池セパレータの成形性、密度を測定した。

【0058】又、これら燃料電池用セパレータを使用して固体高分子型燃料電池を組み立て、200時間発電試験を行い、電圧を測定して初期電圧に対する電圧降下率を算出した。セパレータの諸物性と燃料電池の性能は、以下の表3に示す通り劣ったものであつた。

[0059]

【表3】

		実施例 5	実施例 6	実施例?	比較例4	比較例5
樹脂組成物の組成		実施例1	実施例 2	実施例3	比較例1	比較例2
セパレータ	密度(g/cm³)	1.84	1.80	1.80	1.60	1.55
	ガス透過率		15		1000	2000
	(ml/m²·day·atm)	6		17		
燃料電池	200 時間後の	100%	99%	99%	60%	50%
	電圧降下率	100%		2370	0020	3076
セパレータの成形性(外観)		良好	良好	良好	不良	不良

#### [0060]

【発明の効果】以上の実施例及び比較例から明らかなように、本発明の導電性樹脂組成物を用いた燃料電池セパレータは、カルボジイミド化合物を含有しているので、室温から120℃の湿潤雰囲気下という燃料電池の運転条件においても、優れた高湿耐久性と加水分解耐久性を発揮し、燃料電池の運転安定性、耐久性を向上させるこ

とができる。

【0061】又、本発明の導電性樹脂粗成物は液晶ポリエステル樹脂を主要な樹脂成分としているので、燃料電池セパレータの生産工程として射出成形を採用することができ、容易な大量生産が可能になることから、燃料電池セパレータの生産コストを下げ、生産性をより向上させることができる。

### フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

FΙ

テーマコード(参考)

H O 1 M 8/02 8/10 HO1M 8/02

(72)発明者 丹野 文雄

千葉県千葉市緑区大野台1-2-3 日清

紡績株式会社研究開発センター内

(72)発明者 今城 靖雄

千葉県千葉市緑区大野台1-2-3 日清 紡績株式会社研究開発センター内 (72)発明者 堀江 直史

8/10

千葉県千葉市緑区大野台1-2-3 日清 紡績株式会社研究開発センター内

(72) 発明者 上原 孜

千葉県千葉市緑区大野台1-2-3 日清 紡績株式会社研究開発センター内